

金単原子接合の熱電能の温度依存性

(東工大院・理工) ○松下 龍二, 金子 哲, 木口 学

Temperature dependence of thermopower of single Au atomic junction

(Tokyo Institute of Technology) ○Ryuji Matsushita, Satoshi Kaneko, Manabu Kiguchi

【はじめに】

低次元系物質は巨大熱起電力の発現が期待できるため、効率的な熱電材料として盛んに研究がなされている。特に金属単原子接合は究極サイズの低次元系として、その熱電特性が注目を集めている。熱電材料の性能は無次元性能指数 $ZT = \sigma S^2 T / \kappa$ (T : 温度, σ : 電気伝導率, κ : 熱伝導率, S : 熱電能) により表現される。熱電能 S は単位温度差により生じる起電力を表し、発電特性を示す重要な指標である。バルク材料に関しては温度やドーピング量等の因子に対する熱電能の挙動が詳細に調べられているが、単原子接合の熱電能に関しては構造によって熱電能が変化することが明らかになっている程度である[1]。特に温度はバルク材料において熱電能の大きさを左右する重要な因子であるにも関わらず、金属単原子接合における熱電能の接合温度依存性を解明した研究は殆どない。そこで本研究はモデル系として金単原子接合に着目し 300 K と 100 K における金単原子接合の熱電能を測定する事で、金単原子接合の熱電能の温度依存性を解明する事を目指した。

【実験】

実験は MCBJ (Mechanically Controllable Break Junction) 法を利用して行った。MCBJ 法では切れ込みを入れた金線を弾性基板上に固定し、基板を押し曲げることで金線を機械的に破断させる。本研究では MCBJ 法により作製した金ナノ接合を自己破断させることで金単原子接合を作製した [1, 2]。接合温度は金線の切れ込みの両側に温度計と白金薄膜により作製したヒーターを取り付けることで制御した。室温および液体窒素中に MCBJ 装置を設置し、ヒーターを用いて温度制御を行う事で 300 K 及び 100 K における単原子接合の電気伝導度と熱起電力を同時計測した。

【結果と考察】

100 K における金ナノ接合の自己破断過程における電気伝導度および熱起電力の時間変化を図 1 に示す。電気伝導度は階段状に減少し、 $1 G_0$ ($G_0 = 2e^2/h \approx 13 \text{ k}\Omega$) のプラトーを示した後破断した。 $1 G_0$ は金単原子接合の電気伝導度に対応しており、各伝導度領域で観測されているプラトーは構成原子数の異なる金ナノ接合の構造に対応する。熱起電力は電気伝導度変化に追従して変化し、接合構造変化に対応した金ナノ接合の熱起電力変化が観測された。次に 100 K および 300 K における金単原子接合の熱電能の挙動を明らかにするために、各温度領域において金単原子接合の熱起

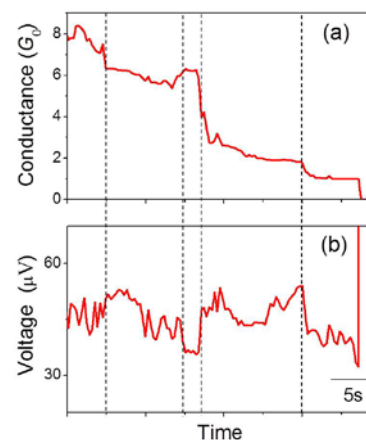


図 1: 金線破断時の電気伝導度 (a) と熱起電力 (b) の時間変化。(高温側温度: 110 K, 低温側温度: 89 K)

電力の温度差(ΔT)依存性を調べた(図 2a)。各温度領域ともに熱起電力は温度差に対して直線的に変化した。直線の傾きは熱電能に対応しており、100 K における場合の方が大きな傾きが得られた。多数の接合に対して熱起電力測定を行なったところ、金単原子接合の熱電能の平均値は 300 K, 100 K でそれぞれ $0.7 \pm 18.1 \mu\text{V/K}$ および $-3.1 \pm 2.7 \mu\text{V/K}$ となり、300 K における熱電能の値は 100 K の場合よりも幅広い分布となった(図 2b)。熱電能は接合の構造に敏感に応答するため、温度の増加に伴う熱揺らぎの増加の結果、300 K で熱電能の揺らぎが大きくなったと考えられる。一方、熱電能の平均値に関しては、ナノ接合における熱電能の式を用いて以下のように説明される[3]。

$$S = -\frac{L(T)}{eTG} \quad \dots (1)$$

$$L(T) = \int dE \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) (E - E_F) \tau(E) \quad \dots (2)$$

但し、 e , T , G , f , $\tau(E)$, E_F は電気素量、絶対温度、電気伝導度、フェルミ分布関数、透過率関数、フェルミ準位である。式(1)より熱電能は、 T と $L(T)$ の寄与により説明される。式(2)で示される $L(T)$ の値は E_F 近傍の $k_B T$ (k_B : ボルツマン定数)の範囲に存在する透過率関数の形状により決定される。金単原子接合の透過率関数は理論計算によりフェルミ準位近傍においてエネルギーに対して単調増加するが、フェルミ準位から離れるに従い単調増加ではなくなる[3]。100 K では構造揺らぎが小さく、また、300 K の場合に比べ積分範囲が小さいため、フェルミ準位近傍の透過率関数の形状を反映して負の熱電能が観測されたと考えられる。一方、300 K においては 100 K の場合に比べ熱揺らぎに由来する構造揺らぎが大きくなるため、理想的な構造の場合とは異なる透過率関数の寄与も大きくなる。更に、300 K ではより広いエネルギー範囲の透過率関数の形状を反映するため、式(2)の積分値が小さくなり熱電能の大きさが小さくなったと考えられる。以上より金単原子接合の熱電能の温度依存性を明らかにした。

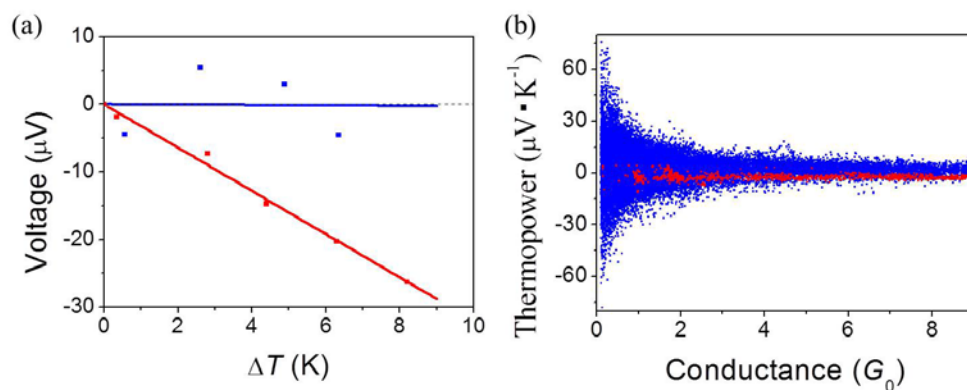


図 2 (a) 金単原子接合の熱起電力平均値の温度差依存性。(青 : 300 K, 赤 : 100 K) 実線はフィッティング直線。(b) 金原子接合の熱電能と電気伝導度の相関図。(青 : 300 K, 赤 : 100 K)。

【参考文献】

- [1] B. Ludoph and J. M. van Ruitenbeek, *Phys. Rev. B*, **59**, 12290 (1999).
- [2] R. Matsushita *et al.*, *Nanotechnology*, **26**, 045709 (2015).
- [3] C. Evangelini *et al.*, *Nano Lett.*, **15**, 1006 (2015).